

# 脉冲激光辐照光学薄膜的缺陷损伤模型\*

赵元安 王 涛 张东平 贺洪波 邵建达 范正修

(上海光学精密机械研究所光学薄膜技术研究与发展中心, 上海 201800)

**摘 要** 建立了缺陷吸收升温致薄膜激光损伤模型, 该模型从热传导方程出发, 考虑了缺陷内部的温度分布以及向薄膜的传导过程, 通过引入散射系数简化了 Mie 散射理论得出的吸收截面. 对电子束蒸发沉积的  $ZrO_2: Y_2O_3$  单层膜进行了激光破坏实验, 薄膜样品的损伤是缺陷引起的, 通过辉光放电质谱法对薄膜制备材料的纯度分析发现材料中的主要杂质元素为铂, 其含量为 0.9%. 利用缺陷损伤模型对损伤过程进行了模拟, 理论模型和实验结果取得了较好的一致性.

**关键词** 光学薄膜; 激光损伤阈值; 缺陷损伤模型; 吸收截面; 散射系数

**中图分类号** O484 **文献标识码** A

## 0 引言

缺陷作为薄膜内的最薄弱环节, 是导致激光薄膜损伤的初始源头. 到目前为止, 各国研究者针对缺陷损伤理论模型已经进行了大量的研究<sup>[1-4]</sup>. 这些研究大多认为杂质缺陷的形状特性将极大影响理论的准确性, 而且杂质缺陷的成份等信息的获得也存在相当大的困难, 因而数十年来对该模型的研究仅仅是限于对薄膜整体特性的预测, 而对特定损伤破斑的损伤发生发展过程的研究几乎未见相关报道. 并且这些前期的研究工作大多将 Mie 散射理论被普遍应用于对吸收截面的计算, 该方法要区分考虑杂质模型的吸收特性的强弱和杂质的尺度, 从应用角度来讲比较复杂. 如果考虑到金属杂质的强吸收特性和尺度, 这种形状所带来的影响是不重要的<sup>[5]</sup>, 本文从经典吸收理论出发, 引入散射系数, 简化了该模型. 通过理论与实验的对比模拟了缺陷杂质导致的激光损伤过程.

## 1 理论模型

缺陷损伤最常用的模型为嵌于薄膜中的一个球形吸收杂质, 在激光辐照下, 膜层和缺陷的温升可以由热传导方程确定

$$\frac{1}{\chi_p} \frac{\partial T_p}{\partial t} = \frac{1}{r^2} \frac{\partial}{\partial r} (r^2 \frac{\partial T_p}{\partial r}) + \frac{A}{K_p} \quad (0 \leq r < a, t > 0) \quad (1)$$

$$\frac{1}{\chi_h} \frac{\partial T_h}{\partial t} = \frac{1}{r^2} \frac{\partial}{\partial r} (r^2 \frac{\partial T_h}{\partial r}) \quad (r > a, t > 0) \quad (2)$$

$$T_p = T_h = 0, t = 0 \quad (3)$$

$$T_p = T_h, K_p \frac{\partial T_p}{\partial r} = K_h \frac{\partial T_h}{\partial r}, r = a \quad (4)$$

式中  $\chi$  和  $K$  分别是热扩散率和热导率, 下标  $p$  和  $h$  分别代表缺陷和膜层,  $A$  为热源项,  $a$  是球形杂质缺陷的半径, 热源项可由入射激光能量密度 ( $I$ ) 和吸收截面 ( $Q$ ) 确定

$$A = \begin{cases} \frac{3QI}{4a^3} & (0 < t < t_p) \\ 0 & (t > t_p) \end{cases} \quad (5)$$

式中  $t_p$  是激光脉冲宽度, 吸收截面可以通过对半个球面内的传播方向上的吸收进行积分得到

$$Q = \frac{16\pi^2 a^3 k^{\frac{\pi}{2}}}{\lambda} \int_0^{\frac{\pi}{2}} \sin \varphi (\cos \varphi)^3 dr \quad (6)$$

$k$  为杂质的消光系数, 式(6)忽略了杂质对入射激光的散射, 可以定义散射系数  $p$ , 当  $p=1$  时表示没有散射, 那么吸收截面可表示为

$$Q = p \frac{16\pi^2 a^3 k^{\frac{\pi}{2}}}{\lambda} \int_0^{\frac{\pi}{2}} \sin \varphi (\cos \varphi)^3 dr \quad (7)$$

首先假设吸收截面和材料的热物特性不随温度发生变化, 则式(1)~(4)的解析解由 Goldenberg 和 Tranter 得出<sup>[6]</sup>

$$\begin{cases} T = \frac{a^2 A}{K_p} \left\{ \frac{1}{3} \frac{K_p}{K_h} + \frac{1}{6} \left[ 1 - \frac{r^2}{a^2} \right] - \frac{2ab \int_0^{\infty} e^{-\frac{y^2 t_p}{r}}}{r \pi} \frac{(\sin y - y \cos y) \sin (ry/a) dy}{y^2 [(c \sin y - y \cos y)^2 + b^2 y^2 \sin^2 y]} \right\} & 0 < r < a \\ T = \frac{a^2 A}{K_p} \left\{ \frac{1}{3} \frac{K_p}{K_h} + \frac{1}{6} - \frac{2b \int_0^{\infty} e^{-\frac{y^2 t_p}{r}}}{\pi} \frac{(\sin y - y \cos y) dy}{y [(c \sin y - y \cos y)^2 + b^2 y^2 \sin^2 y]} \right\} & r = 0 \\ T = \frac{a^3 A}{r K_p} \left\{ \frac{1}{3} \frac{K_p}{K_h} - \frac{2}{\pi} \int_0^{\infty} e^{-\frac{y^2 t_p}{r}} \frac{(\sin y - y \cos y) [b y \sin y \cos \sigma y - (c \sin y - y \cos y) \sin \sigma y] dy}{y^3 [(c \sin y - y \cos y)^2 + b^2 y^2 \sin^2 y]} \right\} & r > a \end{cases} \quad (8)$$

$$\begin{aligned} b &= \frac{K_h}{K_p} \sqrt{\frac{\chi_p}{\chi_h}}, c = 1 - \frac{K_h}{K_p}, \gamma = \frac{a^2}{\chi_p}, \\ \sigma &= \left[ \frac{r}{a} - 1 \right] \sqrt{\frac{\chi_p}{\chi_h}} \end{aligned} \quad (9)$$

\*国家自然科学基金项目(10376040)

Tel: 021-69918496 Email: yazhao@opfilm.com

收稿日期: 2004-07-12

## 2 实验

### 2.1 样品制备

采用电子枪蒸发技术制备了一批  $ZrO_2 : Y_2O_3$  单层膜,膜厚度约为 410 nm,基底为石英.

### 2.2 材料的纯度分析

对于缺陷模型而言,确定杂质的成分是必要的.利用辉光放电质谱仪(GDMS)对镀膜材料所含元素进行了分析,分析结果见表 1.可以看出,在镀膜材料中含有大量杂质元素,但由于其含量低,可以近似忽略,但铂的含量高达 0.9%,又由于铂的化学稳定性极佳,可以认为存在于膜层中的铂元素是以金属形式存在的.铂金属就被认为是杂质的主要成分.

表 1 辉光放电质谱分析结果

元素	Pt	Al	Cu	Ti	Fe
含量/ppm	9790	42	42	12	3.5

### 2.3 激光损伤阈值测试

对样品进行了激光损伤阈值测试,测试方法为 1-on-1 方法,实验测试装置见图 1.

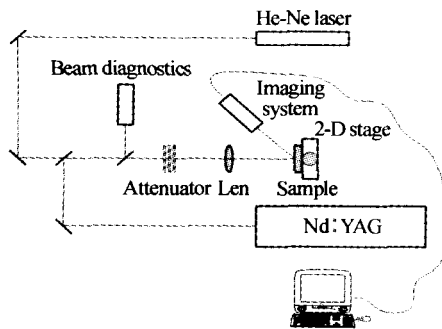


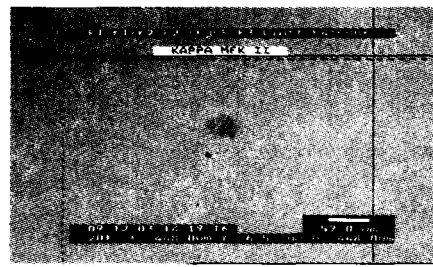
图 1 激光损伤阈值测试装置图

Fig.1 Layout for laser damage threshold testing

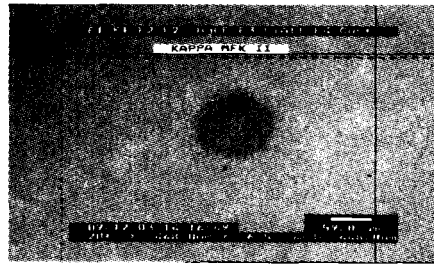
激光输出波长为 1064 nm,脉冲宽度为 12 ns,激光经过焦距为 250 mm 的非球面透镜汇聚至样品表面,样品安置在二维精密调节的步进电机上.调整入射角稍微偏离正入射方向  $2^\circ \sim 3^\circ$ ,以避免基片出射面反射与入射造成的干涉现象.作用在样品表面的能量通过调整外部能量衰减系统完成,并且每个脉冲的能量通过取样板分出的部分能量记录.He-Ne 用于监视样品,并通过散射光辅助判断损伤发生与否.损伤的最终判断可通过 100 倍放大的 Nomarski 显微镜得出.损伤阈值定义为零几率损伤阈值.单层膜样品的阈值为  $11.56 \text{ J/cm}^2$ .

### 2.4 损伤形貌分析

典型的损伤形貌见图 2,其中图 2(a)为阈值状态下的损伤形貌,而图 2(b)为在较高能量密度作用下的形貌.损伤形貌表明损伤都是由膜层中的缺陷引起的,是以缺陷为中心发展的凸起形状.



(a) Damage morphologies near LIDT ( $12 \text{ J/cm}^2$ )



(b) Damage morphologies higher than LIDT ( $11 \text{ J/cm}^2$ )

图 2 损伤形貌

Fig.2 Damage morphologies

首先由于缺陷的尺度是由薄膜的厚度所限制的,这样单层膜中缺陷由于尺寸小热韧性小,在激光辐照下通过吸收激光能量达到很高的温升,首先融化缺陷本身以及其周围小范围的薄膜,进而加热周围的薄膜材料最终由于温度梯度的存在以热力耦合形式表现出来形成凸起形状.

## 3 理论模型的数值模拟

本文计算了杂质对激光的吸收导致的温度分布,激光输出特性参数见表 2.膜层的热物特性等参数如表 3<sup>[8]</sup>.铂杂质在膜层中的存在形式的探测以及热物参数的获得是有相当困难的,为简便起见在模拟过程中将使用块状铂金属的参数来模拟损伤过程,具体参数见表 4<sup>[8]</sup>.

表 2 激光参数

波长/nm	脉宽/ns	模式
1064	12	TEM <sub>00</sub>

表 3 薄膜热物参数

热导率/(J/cm/s/K)	密度/(g · cm <sup>-3</sup> )	比热/(JK · g <sup>-1</sup> )
0.0178	5.355	0.4555
熔点/K	厚度/nm	
2683	412.5	

表 4 铂金属热物参数

热导率/(W/cm/K)	密度/(g · cm <sup>-3</sup> )	比热/(JK · g <sup>-1</sup> )
0.80	21.45	0.146
折射率	消光系数	熔点(K)
(@1064 nm)	(@1064 nm)	
3.7	6.0787	2040

对实验而言,铂金杂质的熔点低于膜层,因而可以该熔点作为损伤判据.又由于膜层厚度约为 410 nm,

因而把缺陷的尺寸限制在 100 nm 以下是合理的.计算结果如图 3.

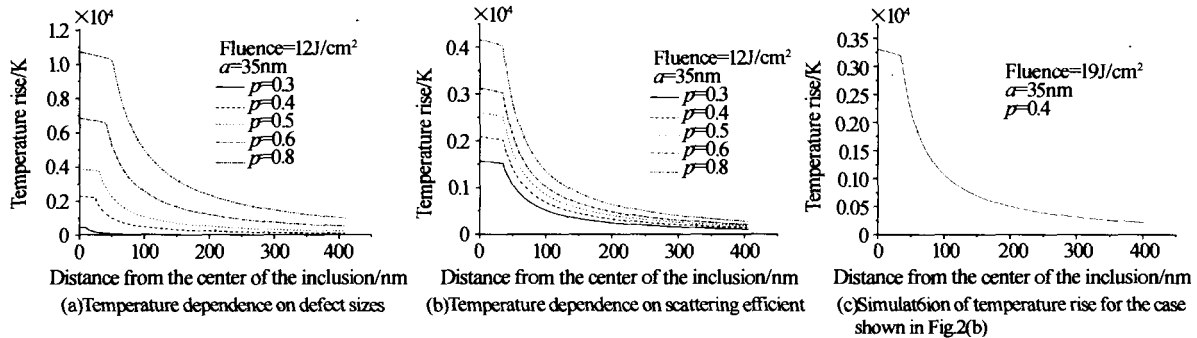


图 3 缺陷和膜层中温度分布计算结果

Fig. 3 Simulation results of the temperature response for the inclusion and thin films

样品的阈值为  $11.56 \text{ J/cm}^2$ , 图 2(a) 所示损伤恰恰是处于阈值能量附近, 可以认为杂质吸收的全部能量所导致的温升正好达到缺陷的熔点. 首先假定散射吸收为 1, 计算了铂杂质的不同尺寸对杂质及膜层中的温升分布, 如图 3(a), 当杂质的半径为 22 nm 时, 杂质的温升正好达到其熔点, 亦为达到损伤阈值状态, 当球形杂质引起的散射被考虑时, 这个尺度将稍有增大. 假设杂质的半径为 35 nm, 不同的散射系数所导致的温度分布如图 3(b), 当散射系数等于 0.4 时, 温升恰恰达到熔点, 也就是损伤状态. 对于高于阈值能量密度的激光辐照 (如图 2b), 如果采用同样的杂质尺度和散射特性, 其温度分布模拟结果见图 3(c), 杂质和膜层中的温升分布都大大高于他们的熔点, 因而导致大范围内的损伤.

#### 4 结论

薄膜内球形杂质导致的损伤模型通过引入散射系数而得以简化, 并且通过实验, 对含有铂杂质的  $\text{ZrO}_2 : \text{Y}_2\text{O}_3$  单层膜在激光辐照下的损伤过程进行了模拟, 理论模型和实验结果取得了较好的一致性.

#### 参考文献

1 Hopper R W, Uhlmann D R. Mechanism of inclusion damage in laser glass. *App Phys*, 1970, **41**(10): 4023~4037

2 Duthler C J, Sparks M J. Extrinsic absorption in laser window materials. *SPIE*, 1974, **414**: 219~226

3 Lange M R, Mciver J K. Pulsed laser induced damage of an optical material with a spherical inclusion; influence of the thermal properties of the materials. *SPIE*, 1984, **669**: 380~386

4 Walker T W, Vaidyanathan A, Guenther A H. Impurity breakdown model in thin films. *SPIE*, 1979, **568**: 479~496

5 Papernov S, Schmid A W. Heat transfer from localized absorbing defects to the host coating material in  $\text{HfO}_2/\text{SiO}_2$  multilayer systems. *SPIE*, 1997, **2966**: 283~291

6 Goldenberg H, Tranter C J. Heat flow in an infinite medium heated by a sphere. *Bri J App Phys*, 1952, **3**(9): 296~298

7 高卫东, 张纬丽, 张大伟, 等.  $\text{HfO}_2$  薄膜的结构对激光损伤阈值的影响. *光子学报*, 2005, **34**(2): 176~179  
Gao W D, Zhang W L, Zhang D W, et al. *Acta Photonica Sinica*, 2005, **34**(2): 176~179

8 Edwards G. Damage assessment and possible damage mechanisms to 1 meter diameter Nova turning mirrors. *SPIE*, 1989, **1438**: 278~290

## Pulsed Laser Induced Damage Model of Optical Coatings with Absorbing Inclusion

Zhao Yuan'an, Wang Tao, Zhang Dongping, He Hongbo, Shao Jianda, Fan Zhengxiu  
*Research & Development Center for Optical Thin Film Coatings, Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics,  
Chinese Academy of Science, Shanghai 201800*

Received date: 2004-07-12

**Abstract** Pulsed laser damage model of optical coatings with absorbing inclusion was investigated. The case for absorbing inclusion thermal model was derived from the thermal conduction equations and the heat transfer from the absorbing defects to the host coatings materials was considered. The absorption cross section of the inclusion was simplified by introducing scattering coefficient. The model was used to simulate the damage onset and the damage expanding process.  $ZrO_2 : Y_2O_3$  monolayer was prepared by Electron Beam Evaporation (EBE), and laser damage testing was performed. The typical damage was defects-initiated. The main impurity element was platinum from the Glow Discharge Mass Spectrometer (GDMS) analysis, and the content of it was about 0.9%. The numerical simulation result of laser damage was found to agree well with experimental data.

**Keywords** Optical coatings; Laser induced damage threshold; Defect induced damage model; Absorption cross section; Scattering coefficient



**Zhao Yuan'an** received his B. S. degree from the Department of Physics at Henan Normal University in 1998 and his M. S. degree from the Department of Physics at Sichuan University in 2001. He is currently a Ph. D. candidate at the Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics, Chinese Academy of Sciences. His current research interests include laser-induced damage to optical coatings and measurement of properties of optical coatings.